

540582

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2004 年 7 月 22 日 (22.07.2004)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2004/061056 A1

- (51) 国際特許分類⁷: C10L 1/18, C10C 5/00 (71) 出願人 および
(21) 国際出願番号: PCT/JP2003/016457 (72) 発明者: 入谷 隆昌 (IRITANI, Takamasa) [JP/JP]; 〒751-0814 山口県 下関市 壇之浦町 3-1 Yamaguchi (JP).
(22) 国際出願日: 2003 年 12 月 22 日 (22.12.2003) (74) 代理人: 佐伯 憲生 (SAEKI, Norio); 〒103-0027 東京都中央区 日本橋三丁目 1 5 番 2 号 高愛ビル 9 階 Tokyo (JP).
(25) 国際出願の言語: 日本語 (81) 指定国 (国内): BR, CN, JP, US.
(26) 国際公開の言語: 日本語 添付公開書類:
— 国際調査報告書
(30) 優先権データ: 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。
特願 2002-379885
2002 年 12 月 27 日 (27.12.2002) JP

(54) Title: LOWER ALCOHOL ACTIVATED WITH PLOUGH CATALYST AND FUEL ADDITIVE COMPRISING THE SAME

(54) 発明の名称: プラウ触媒で活性化された低級アルコール、それを含有してなる燃料添加剤

(57) Abstract: A fuel additive which can inhibit the emission of harmful gases from a fuel such as gasoline or gas oil without adversely influencing the consumption of the fuel and with which the fuel can be stably stored; and a fuel composition containing the fuel additive added thereto. Also provided are: a method of activating a lower alcohol which comprises bringing the lower alcohol into contact with a substance activated by heating and pressurizing in the presence of wood vinegar and/or bamboo vinegar or with a material formed by processing the substance; a lower alcohol activated by the method; and one or more lower alcohols comprising the activated lower alcohol. The fuel additive comprises the one or more lower alcohols. The fuel composition comprises a fuel and the fuel additive.

(57) 要約: 本発明は、ガソリンや軽油などの燃料の燃費を悪化させることなく、有害ガスの放出を抑制することができ、かつ燃料を安定に保存できる燃料添加剤、及び当該燃料添加剤が添加された燃料組成物を提供する。本発明は、木酢液及び／又は竹酢液の存在下で、加温、加圧することにより活性化された物質、又は当該物質の加工された低級アルコールに関する。また、本発明は、当該活性化された低級アルコールを含有してなる低級アルコール、当該低級アルコールの 1 種又は 2 種以上を含有してなる燃料添加剤に関する。さらに、本発明は、燃料、及び前記した燃料添加剤を含有してなる燃料組成物に関する。

WO 2004/061056 A1

明 細 書

プラウ触媒で活性化された低級アルコール、それを含有してなる燃料添加剤

技術分野

本発明は、木酢液及び／又は竹酢液の存在下で、加温、加圧することにより活性化された物質、又は当該物質の加工物に低級アルコールを接触させることからなる、低級アルコールを活性化させる方法、及びその方法により活性化された低級アルコールに関する。また、本発明は、当該活性化された低級アルコールを含有してなる低級アルコール、当該低級アルコールの１種又は２種以上を含有してなる燃料添加剤に関する。さらに、本発明は、燃料、及び前記した燃料添加剤を含有してなる燃料組成物に関する。

背景技術

２０世紀は西洋文明の歴史であり、物質科学と市場経済の歴史でもあった。その結果として、自然のリズムは徐々に狂い始め、大気汚染や河川・海洋の汚染、更には酸性雨による土壌の酸性化、地球温暖化等の自然破壊が随所に表面化してきた。また、一方では、農作物への化学肥料・農薬の無計画な使用により土壌の無機化と化学物質の残留が進み、年々農作物への栄養供給能力が低下していることは、承知の通りである。更に、土壌中に残留する硝酸や農薬などに含まれる有害物質が農作物に残留し、意に反して人の体内に取り込まれた硝酸は、活性酸素を発生させる要因となり、農薬による残留有害物質は、人体に少なからず障害を引き起こしていると考えられている。

特にガソリンなどの化石燃料を使用した内燃機関の普及は、大気中の二酸化炭素の量を増加させるだけでなく、多量の酸化窒素や酸化硫黄、さらに有機微粒子（ＨＣ）を大気中に放出し、大気汚染の大きな原因のひとつになっている。このために、化石燃料の使用に換えて、アルコールや天然ガスを燃料にした内燃機関や、燃料電池などによる電気自動車などの開発が行われているが、馬力や加速性が十分ではなく、普及するに至っていない。

本発明者は、ガソリンなどの燃料の低公害化についての発明をしてきた（先行技術文献 1 及び 2 参照。）。これはガソリンなどの燃料油を磁場中に通し、次いで超音波で処理し、トルマリン石などの特定の無機物質の存在下の電場に通すことからなる燃料油の処理方法及びその装置に関するものである。詳細な理由は必ずしも明確ではないが、このような処理を行うことにより排気ガス中の CO_2 、 NO_x 及び SO_x の量が減少し、また同時に炭化水素微粒子の排出量も減少し、公害の少ない燃料油を得ることができることを明らかにしてきた。

この方法における詳細な機構は現在のところ必ずしも明確にはなっていないが、このような処理により驚くべき効果があったことが事実に行われている。

また、畑中らは、セラミックス、金属片、強磁性鉱物などの無機物質に加圧水を通し、次いで曝気して、水を活性化鉱水にする方法を開示している（先行技術文献 3 参照。）。水をこのように処理することにより、無機物質中の無機質が溶存し、曝気により溶存酸素量も増加し、大腸菌などの微生物の繁殖が抑制された水を得ることができると開示されているが、燃料への適用については開示されていない。

本発明者らは、物質を、木酢液及び／又は竹酢液の存在下で、加温、加圧することにより、当該物質を活性化させる方法、及び当該方法により活性化された物質（これを、ブラウ触媒という。）についての発明を特許出願してきた（先行技術文献 4 参照）。さらに、このような活性化された物質を利用したコンクリートボード（このボードを、エコボードという。）についての発明も特許出願してきた（先行技術文献 5 参照）。

この出願の発明に関連する先行技術文献情報としては次のものがある。

1. WO 98/42807 号
2. 米国特許明細書第 5980700 号
3. 特開平 3-106494 号
4. 特願 2002-348151 号明細書
5. 特願 2002-348152 号明細書

発明の開示

本発明は、ガソリンや軽油などの燃料の燃費を悪化させることなく、有害ガスの放出を抑制することができ、かつ燃料を安定に保存できる燃料添加剤、及び当該燃料添加剤が添加された燃料組成物を提供することを目的としている。

図面の簡単な説明

第1図は、本発明のプラウ触媒を製造する装置の例を上から見た図である。

第2図は、本発明のプラウ触媒を製造する装置の例の断面図である。

符号の説明

- 1 本発明のプラウ触媒の製造装置
- 2 蓋
- 3 蓋ロックハンドル
- 4 オーリングシール
- 5 加圧空気供給口
- 6 液体取り出し口
- 7 サクションパイプ
- 8 プロテクター
- 9 リリーフバルブ

発明を実施するための最良の形態

本発明者は燃料油を低公害化する方法について検討してきたが（先行技術文献1及び2参照。）、さらにそれを広く応用することができる方法を検討してきた。その結果、燃料油に限らず物質に特定の処理をすることにより当該物質が活性化し、生体をはじめ他の多くの物質に大きな影響を与えることを見出し、このような物質の活性化方法、及び当該方法で活性化された物質を提供してきた（先行技術文献4及び5参照）。即ち、ガラスなどの物質を、木酢液及び／又は竹酢液の存在下で、加温、加圧することにより、当該物質を活性化させる方法、及び当該方法により活性化された物質を提供してきた。本発明者らは、さらに検討を進めてきた結果、このような活性化された物質（以下、このような方法で活性化された物質を「プラウ触媒」という。）を用いて低級アルコールを活性化することが

でき、これをガソリンや軽油などの燃料に添加することにより、排気ガス中の有害ガスの量を大幅に減少させることを見出した。

即ち、本発明は、木酢液及び／又は竹酢液の存在下で、加温、加圧することにより活性化された物質、又は当該物質の加工物に低級アルコールを接触させることからなる、低級アルコールを活性化させる方法、及びそれにより活性化された低級アルコールに関する。

また、本発明は、前記した本発明の活性化された低級アルコールを含有してなる燃料添加剤、及び当該燃料添加剤を含有してなる燃料組成物に関する。

本発明は、木酢液及び／又は竹酢液の存在下で、物質を特定の温度と圧力で加温及び加圧することにより、物質を活性化させ、このようにして活性化された物質の利用に関する。以下、本発明ではこのようにして活性化された物質のことを「ブラウ触媒」と称する。

このようなブラウ触媒の製造に使用される物質としては、セラミックス、ガラス、天然石などのシリカ等を主成分とする物質、二酸化ケイ素などの無機物質類：アルミニウム、チタン、ステンレス、鉄等の金属類：金、銀等の貴金属類：樹脂等の有機物質類などの化学品などが挙げられる。

本発明のブラウ触媒により、これまで破壊された自然環境の回復を図るべく、土壌や河川に自助活性能をもたせることが期待できる。応用例としては、新規ブラウ触媒を活用して酸性化した土壌をもとの自然の土壌に還元する方法等が提案される。

本発明のブラウ触媒により物質がどのように活性化されるのかということについては必ずしも明確ではないが、本発明者が動植物の基本構成元素のひとつである水素の機能にヒントを得て開発したものである。本発明のブラウ触媒は、分子中の水素原子の分子内での運動や分子間の会合状態を、本発明の方法により人工的に特殊化できたものと考えられる。このように本発明の方法により分子内での水素原子などの元素の運動や状態を特殊化させたものが本発明の「ブラウ触媒」と考えられる。そして、このブラウ触媒に接触した物質は、ブラウ触媒からその分子の運動や状態についての情報が伝えられ、その物質が持つ水素原子などの元素の分子運動が正常に反応し始めることになると考えられる。

水は、この世に存在する物質の中で最も多い物質であり、かつ生命体においても最も多く含まれる物質である。そして、水は、酸素原子と2個の水素原子からなるものであり、通常は水素結合により多数の水分子が会合した状態で存在している。水の水素原子が正常かつ活発な分子運動を起こすことによって、水を含む物質が本来持っている機能、特性が引き出されることになる。しかし、現代は様々な化学物質などにより、その基本的な構造がゆがんできており、本発明のプラウ触媒は、そのゆがんだ構造を、もともとの自然のリズムに戻してやる役割を果たしていると考えられる。

また、植物の光合成や動物の免疫機能を持つ細胞に大きく影響しているのが遺伝子やたんぱく質である。そして、その遺伝子やたんぱく質の構造を維持しているのが水素原子であり、多数の水素結合による3次元的な構造が維持されている。本発明のプラウ触媒による、分子内での水素原子などの運動や状態などの正常化作用は、当然、この機能を最大限に引き出し、生命維持に必要なものは増やし、不必要なものからは防御する力を、自ら保有する自然の能力として発揮するようになる。

これまで、鉱物に水を接触させるなどして作った水や、バイオの力で生物の機能回復や拡大を図った発見はあるが、水素の分子運動に着目したものは、このプラウ触媒が初めてである。

次に、本発明のプラウ触媒の効果を実験により示す。

ガラスビーズを用いて製造した本発明のプラウ触媒を用いて製造された本発明のプラウ活性水を用いてコンクリート塊を製造した。製造されたコンクリート塊は、B4の大きさと厚さ12～13cmとした。このコンクリート塊（以下、このコンクリート塊をエコボードと呼ぶ。）を用いて、全国33カ所の田んぼで稲の生育についての比較試験を行った。約300坪の田んぼ当たり6枚のエコボードを等間隔に用いた。比較のために一方の田んぼにはエコボードを用いなかった。この結果を次の表1に示す。

表 1

	ブラウ触媒を用いた田	ブラウ未使用の田
稲の収穫量	100%の農家が未使用田に比べ、30～40%増収	
米の評価 (艶、透明感など)	95%の農家が、農協評価ランクで「上級の上」	
稲の分ケツ状況	平均25～35本	平均15～20本
稲穂1本当たりの米粒平均数	平均98粒	平均75粒
農薬散布の回数	20%の農家が0回 80%の農家が1回	3～5回 (田植え直前の散布も含む)
オタマジャクシの生育状況	100%の農家が未使用田に比べ、20～30倍増	

農薬散布が大幅に減少したのは、稲自体の生命力が強くなり、害虫などに対する生命力が強くなったためと考えられる。また、ブラウ触媒を用いた田んぼで育った稲は通常のものより根が2倍大きく茎も太く丈夫であった。さらに、米の小米が通常の米に比べ半分に減少していた。このように、本発明のブラウ触媒を使用することにより、収穫量が増加するだけでなく、稲自体の生育が健全になり、自然により近い状態での育成が可能となる。

更に、一部の田んぼでは、オタマジャクシの他にみみずやトンボの増加も観察された。また、ブラウ触媒を用いた田んぼの土は、さらさら地質から粘り地質に変化し、これはブラウ触媒が土壌の改善にも寄与したことを示している。

この実験において収穫された米の成分を測定した結果、ブラウ触媒を用いた田んぼから収穫された米は、たんばく質成分(うまみ成分)が含有量が平均約8～8.5%であった。通常の米のたんばく質成分の含有量は平均約5～5.5%で

あったことから、本発明のブラウ触媒を用いた田んぼから収穫された米は通常の米に比べて約60%もタンパク質成分が増加していることがわかった。一般に米のたんばく質の含有量が多すぎると冷めたときにご飯が硬くなると言われているが、この場合、冷めても味に格別の変化は見られず、ブラウ触媒を用いた田んぼから収穫された米は冷めてもおいしく食べられるのが特徴である。

次に、ガラスビーズ状の本発明のブラウ触媒を用いて金属の錆びについての実験を行った。

透明なプラスチックの器を二つ用意し、一方にはブラウ触媒の機能を持つガラスビーズと水道水及び安全ピンを入れ、他方には水道水と安全ピンだけを入れ、共に密閉して静置した。ガラスビーズ状の本発明のブラウ触媒を入れない器の安全ピンは水道水中ですぐに錆び始めたが、ガラスビーズ状の本発明のブラウ触媒を入れた前者の器の安全ピンは6ヶ月を経過しても錆びなかった。現在もこの実験を継続しているが、未だ錆びはじめていない。

これは、本発明のブラウ触媒の働きにより水が活性化され、金属製のピンが錆びにくくなったためと考えられる。

次に、ブラウ触媒を用いた魚の生育状況について実験を行った。

ガラスビーズを用いて製造した本発明のブラウ触媒を用いて製造された本発明のブラウ活性水を用いてコンクリート塊を製造した。製造されたコンクリート塊は、直径約1.5～2cmの粒状（エコ粒）とした。このコンクリート塊を、魚や水草が生育している水槽に40個入れた。

現在のところ、このコンクリート塊を水槽に入れてから焼く4年以上が経過しているが、水槽の水は実験開始から変えなくても、腐っていない。現在さらに実験を継続中である。魚や水草も、元気に成長を続けている。さらに、水槽の底にたまった魚の糞も塊となって残るものの、腐食していない。

通常、水槽にコンクリートを上記のように入れると、コンクリートのアルカリ性が強いため、生物は死滅するが、ブラウ触媒の作用により、有毒なものは排除され、自然界に存在する動植物の生命維持、育成に必要なエネルギーが生命に伝達された結果、腐敗することなく生育できたものと考えられる。

また、本発明のブラウ触媒を含有するコンクリートの塊の上に水道水を入れた

ガラスコップを置き、生花をいけた。ただ単に水道水入りのガラスコップにいけた同じ生花より、前者の方が開花が大幅に早かった。これも、本発明のブラウ触媒の持つエネルギーが、コップのガラスを通過し、中の水道水に伝達されて開花が促進された結果と考えられる。

同様に、観葉植物や植木などの生育も、本発明のブラウ触媒を用いることにより活発化された。

さらに、本発明のブラウ触媒と接触させた水を用いることにより、お茶やコーヒー、お酒水割りの味がまろやかになった。お茶などは、出がらしでもよく色も味もでた。また、いりこなどのだしがよくとれる一方、臭みを感じなくなった。

本発明のブラウ触媒と接触させた牛乳は、賞味期限が通常よりも延びるだけでなく、その後も腐食するのではなく、放置しておく次第に分離（水、たんぱく質、脂肪分）し、ヨーグルト状態になった。これを、ヨーグルトとして食べることができた。

以上のように、本発明のブラウ触媒は、種々の作用効果を奏し、生物の生育、金属の保存、味覚の改善、食品の保存などの各用途において極めて優れた作用効果を奏するものである。

さらに、本発明のブラウ触媒は、前記した作用効果の他に、有害な電磁波から生体を保護する作用、マイナスイオンの増加作用、空気の清浄化作用なども有ると考えられる。

次に、本発明のブラウ触媒の製造方法について説明する。

本発明のブラウ触媒は、セラミックス、ガラス、天然石などのシリカ等を主成分とする物質、二酸化ケイ素などの無機物質類：アルミニウム、チタン、ステンレス、鉄等の金属類：金、銀等の貴金属類：樹脂等の有機物質類などの化学品などの物質を、木酢液及び／又は竹酢液の存在下で、当該物質を特定の温度と圧力で加温及び加圧することにより製造することができる。

本発明のブラウ触媒の製造に使用される木酢液は、木材を乾留して得られる黒褐色で刺激臭のある液体であり、エステル類、ラクトン類などの多数の成分を含有している液体である。本発明の方法において使用される木酢液としては、木材からのものであればよいが、広葉樹や針葉樹等からの木酢液が好ましい。また本

発明の方法で使用される竹酢液としては、竹を乾留して得られる液体であり、前記した木酢液と同様に使用することができる。

本発明の方法では、木酢液又は竹酢液をそれぞれ単独で使用することもできるが、木酢液及び竹酢液の両者を併用するのが好ましい。両者を併用する場合の混合比には特に制限はないが、木酢液：竹酢液の比が1：0.01～10，1：0.1～5，又は1：0.1～3の範囲で混合するのが好ましい。

これらの木酢液及び／又は竹酢液は、水で希釈して使用するのが好ましく、通常は0.0001%～1%程度の濃度、好ましくは0.002%～0.2%の濃度、より好ましくは0.002%～0.02%の濃度で使用する。

また、木酢液及び／又は竹酢液の使用量は特に制限はないが、活性化される物質が十分に浸る量、好ましくは1.2～5倍量、1.5～3倍量使用される。

本発明のプラウ触媒を製造するための温度としては、室温付近の温度が好ましく、通常は約10～80℃、好ましくは20～50℃程度である。

本発明のプラウ触媒を製造するための圧力としては、ゲージ圧で5～50気圧、好ましくは5～10気圧程度である。加圧するために使用される気体としては、窒素ガスなどの不活性ガスを使用することができるが、空気や炭酸ガスなどを使用することもできる。

本発明のプラウ触媒を製造する際に、木酢液及び／又は竹酢液を加温、加圧することにより、製造装置内において木酢液及び／又は竹酢液の固有の電磁波が発生しているとも考えられる。木酢液及び／又は竹酢液が有する固有の電磁波の吸収帯がどのあたりかという詳細な検討はなされていないが、本発明の方法による処理により、物質が電磁的な影響を受け、物質内の水素原子、特に水素結合などに関与している水素原子が特有な影響を受け、活性化されたのではないかと考えられる。このように、本発明は、物質の活性化に当たり、木酢液及び／又は竹酢液を使用することを第一の特徴とし、さらにこれを加温及び／又は加圧することを第二の特徴とするものである。

また、本発明は、このようにして活性化された物質を原材料として、これを加工して活性化された物質を製造する方法、及びその方法により製造された物質を提供するものである。例えば、前記した本発明の方法によりガラスの原料である

二酸化ケイ素を活性化し、このようにして得られた活性化された二酸化ケイ素を用いてガラスを製造することができる。このようにして製造されたガラスは本発明の活性化された物質として作用を有している。

本発明のブラウ触媒を製造するための装置としては、加圧できる容器であれば特に制限はない。装置としては第1図および第2図に示す装置を例示することができる。第1図は製造装置を上から見た図であり、第2図はその断面図である。

製造装置1は、略円筒状の形状であり、その上部には、蓋2があり、蓋2には蓋ロックハンドル3が取り付けられており、蓋2はオーリングシール4でシールされて加圧可能になっている。装置1の上部には加圧空気供給口5、リリーフバルブ9、及び液体取り出し口6が設けられている。装置1の内部にはサクションパイプ7が導入されている。装置1はプロテクター8により補強されている。

製造装置1の中に0.002%~0.02%の濃度の木酢液及び／又は竹酢液を入れ、活性化される物質として、例えばガラスの原料である二酸化ケイ素を添加して、オーリングシール4と共に蓋2を締める。蓋ロックハンドル3でロックした後、加圧空気供給口5から加圧空気を注入して、8気圧で30℃に保つ。この状態で約48時間維持することにより二酸化ケイ素が活性され、ブラウ触媒機能をもったガラスの原料となる。活性化された二酸化ケイ素をガラスビーズの生産量の5%を添加することにより、製造されたガラスビーズ全量がブラウ触媒となる。

一般にこのような活性化された物質を用いて、これを原材料として次の物質を製造する場合には、原材料として0.01重量%以上、好ましくは0.01重量%~80重量%、0.1%以上、1~80重量%、より好ましくは1~50重量%、1~20重量%、1~10重量%程度が選択される。

本発明は、このようにして活性化された物質（ブラウ触媒）を用いて低級アルコールを活性化する方法に関する。本発明の活性化された低級アルコールは、前記してきたブラウ触媒に低級アルコールを接触させて製造することができる。例えば、貯蔵槽などの容器に低級アルコールを入れ、その中にブラウ触媒を入れておくことにより製造することができる。好ましい製造方法としては、ブラウ触媒を充填した容器に低級アルコールを循環させて、全ての低級アルコールが十分に

プラウ触媒と接触できるように、循環ポンプなどを使用して低級アルコールを循環する方法が挙げられる。

本発明の方法におけるプラウ触媒と低級アルコールとの接触時間には特に制限はないが、活性化が十分に移行できる時間接触させておくのが好ましい。

本発明の低級アルコールとしては、炭素数 1 ～ 15、炭素数 1 ～ 10、又は炭素数 1 ～ 8 の直鎖状又は分枝状の脂肪族飽和低級アルコールが好ましい。好ましい低級アルコールとしては、例えば、メチルアルコール、エチルアルコール、*n*-プロピルアルコール、*i*-プロピルアルコール、*n*-ブチルアルコール、*i*-ブチルアルコール、第三級ブチルアルコール、ペンチルアルコール、ヘキシルアルコールなどの常温で液状のアルコールが挙げられるが、これらに限定されるものではない。人間や生物に対する安全性、価格の点からエチルアルコール、*i*-ブチルアルコールなどが好ましい。

前記の方法により活性化された本発明の活性化低級アルコールは、そのまま使用することもできるが、これを同一又は異なるアルコールにより希釈して使用することもできる。前記の方法により製造された本発明の活性化アルコールの含有率としては、0.5%以上、好ましくは0.5～10重量%、0.5～5重量%の範囲で含有することができる。通常は活性化されたアルコールと同一のアルコールを用いて、活性化アルコールが1～3重量%になるように希釈して使用される。

本発明の燃料添加剤は、前記した方法により活性化された低級アルコール、又は活性化された低級アルコールの濃度が0.5～10重量%になるように希釈された低級アルコールの1種又は2種以上を含有することを特徴とするものである。経済的な観点からは、約0.5～3重量%の活性化された低級アルコールを含有する低級アルコールを使用するのが好ましく、この程度の濃度で十分本発明の効果を奏することができる。

本発明の燃料添加剤は、前記した方法により活性化された低級アルコール、又は活性化された低級アルコールの濃度が0.5～10重量%になるように希釈された低級アルコールの1種又は2種以上を、少なくとも1重量%以上、好ましくは1～100重量%、1～80重量%、3～50重量%、3～40重量%、又は5

～40重量%含有してなるものである。本発明の燃料添加剤は、前記した低級アルコールの他に、燃料となる成分、又は燃料の性質改善剤などを含有していてもよい。例えば、メチルtert-ブチルエーテルなどのエーテル系化合物、ブタノールやメタノールなどの低級アルコール、トルエンやベンゼンなどの炭化水素類、ナフサや石油エーテルなどの石油留分などを含有していてもよい。また、水分除去剤や、アンチロック剤などの性質改善剤をさらに含有していてもよい。

本発明は、前記した本発明の燃料添加剤を含有してなる燃料組成物を提供するものである。本発明の燃料としては、自動車、船、飛行機などに使用される内燃機関に使用される燃料が好ましいが、ボイラーなどに使用される燃料に使用することもできる。このような燃料としては、例えばガソリン、軽油、重油などが挙げられる。

本発明の燃料組成物は、燃料に対して任意の割合で前記した本発明の燃料添加剤を添加してなるものである。混合割合には特に制限はないが、例えば、5～80重量%、5～70重量%、好ましくは5～20重量%、通常は5～10重量%の範囲で使用される。

また、本発明の燃料組成物は、ガソリン、軽油、重油などの燃料、及び前記してきた本発明の燃料添加剤の他に、他の燃料成分を含有していてもよい。他の燃料成分としては、メチルtert-ブチルエーテルなどのエーテル系化合物、ブタノールやメタノールなどの低級アルコール、トルエンやベンゼンなどの炭化水素類、ナフサや石油エーテルなどの石油留分などが挙げられる。

本発明の燃料添加剤は、低級アルコールを主成分とするものであり、ガソリン、軽油、重油などの燃料の多くは炭化水素類であることから、低級アルコールの濃度が高くなると一般に相分離が起きる可能性があるが、本発明の活性化された低級アルコールを使用すれば、低級アルコールの濃度が70重量%であっても長期間にわたって安定に保存することができる。例えば、

本発明の活性化されたエタノールを1重量%含有するエタノール：65重量%、
ブタノール：5重量%、及び、

ガソリン：30重量%

からなる燃料組成物は、常温で4年間保存しておいても相分離は観察されてい

い。また、この燃料組成物を -20°C で 24 時間冷却しても相分離は観察されなかった。

このように、安定な燃料組成物を提供することができることも、本発明のおおきな特徴のひとつである。

また、本発明の燃料組成物、又は本発明の燃料添加剤を添加してなる燃料は、排気ガス中から有害な成分の排出を抑制できる。例えば、次の組成の本発明の燃料添加剤を製造して、その性能を試験した。

燃料添加剤（プラウ F A）： .

活性化されたイソブタノールを 1 重量%含有するイソブタノール：5 重量%、
エタノール : 6 5 重量%

ナフサ・ラフィネート　　：　　30重量%

この燃料添加剤（ブラウ F A）を 7 重量%含有するガソリンと、全く含有していない対照のガソリンを用いて、型式：E-GX-110 エンジン（トヨタ）により 10・15 モードでの試験を行った。その結果を次の表 2 に示す。

表 2

ガソリン 10・15モード

	C O (g/km)	H C (g/km)	N O _x (g/km)	C O ₂ (g/km)	燃料消費率 (km/L)
添加前	0 . 8 0	0 . 1 0	0 . 1 2	2 3 1	1 0 . 2
添加後	0 . 4 1	0 . 0 4	0 , 1 3	2 3 2	1 0 . 2

この結果、燃費はいずれも 10.2 km/L で同じであったが、一酸化炭素 (CO) の排出量は、無添加のガソリンでは 0.80 g/km であったのに対して、本発明の燃料添加剤を添加したガソリンでは、 0.41 g/km と約半減していた。炭化水素 (HC) の排出量においても、無添加のガソリンでは 0.10 g/km であったのに対して、本発明の燃料添加剤を添加したガソリンでは、 0.04 g/km と約半減していた。窒素酸化物 (NO_x) や二酸化炭素 (CO_2) では両者におおきな差はみられなかった。

本発明の燃料添加剤を含有するガソリンは、合計で約 5 重量 % の低級アルコールを含有するものであるが、この程度の通常の低級アルコールの含有率では排気ガスの成分に大きな変化が現れることは無いことから、以上の結果は、本発明の方法により活性化された低級アルコールの効果ということになる。即ち、本発明の燃料添加剤を使用することにより、燃料の燃費に大きな影響を与えることなく、排気ガス中の一酸化炭素や炭化水素の排出量を約半分に減少させることができることになる。

本発明のプラウ触媒により活性化された低級アルコールの効果は、前記してきたように、極めて優れてものである。その作用機構の詳細は必ずしも明確ではないが、プラウ触媒の作用を受けやすいと考えられる水素原子を有する低級アルコールがプラウ触媒により活性化され、活性化された低級アルコールの成分が燃料の燃焼に何らかの作用をしているものと考えられる。活性化された低級アルコールの水酸基部分の水素原子が、燃料の炭化水素の水素原子や、空気中の酸素原子など何らかの相互作用をして、より完全な燃焼を誘導するものと考えられる。その結果、排気ガス中の不完全燃焼の残渣と考えられる一酸化炭素や炭化水素の量が減少したものと考えられる。

なお、特願 2 0 0 2 - 3 7 9 8 8 5 明細書に記載された内容を、本明細書にすべて取り込む。

実施例

以下、参考例及び実施例により本発明をより具体的に説明するが、本発明はこれら実施例により何ら限定されるものではない。

参考例 1 ガラス製品からなるプラウ触媒の製造

(1) 二酸化ケイ素の活性化

第 1 図及び第 2 図に示した装置 1 を用いて、ガラスの原料である二酸化ケイ素をプラウ触媒に活性化した。

水道水 1 0 L に対し、木酢液、竹酢液の混合液の濃度が 0 . 0 5 % となるよう

に調製した溶液を装置 1 に入れ、その中にガラスの原料である二酸化ケイ素を 10 kg 入れて蓋 2 を締めて、加圧空気を導入して 8 気圧とした。

30℃で48時間、この状態で維持した後、装置 1 から活性化された二酸化ケイ素を取り出した。

(2) ガラスビー玉、ガラスビーズからなるブラウ触媒の製造

ガラスビー玉、ガラスビーズ製造時に、実施例 1 で活性化された二酸化ケイ素をガラスビーズを製造する量の 5 % となるように調製し、ガラスビー玉、ガラスビーズからなるブラウ触媒を製造した。

実施例 1 ブラウ触媒により活性化されたイソブタノールの製造

容積 600 ml の容器に参考例 1 で製造したガラスビー玉及びガラスビーズからなるブラウ触媒を、それぞれ 400 g を充填し、550 L の貯蔵槽に貯蔵したイソブタノール 100 L を流速 10 L / 分で、48 時間循環させてブラウ触媒で活性化されたイソブタノール 100 L を製造した。

実施例 2 ブラウ触媒により活性化されたエタノールの製造

容積 600 ml の容器に参考例 1 で製造したガラスビー玉及びガラスビーズからなるブラウ触媒を、それぞれ 400 g を充填し、550 L の貯蔵槽に貯蔵したエタノール 100 L を流速 10 L / 分で、48 時間循環させてブラウ触媒で活性化されたエタノール 100 L を製造した。

実施例 3 活性化されたイソブタノールを含有するイソブタノールの製造

実施例 1 に記載の方法で製造されたイソブタノール 0.1 L を、イソブタノール 9.9 L 中に加えて、良く攪拌して、活性化されたイソブタノールを 1 重量% 含有する本発明の活性化イソブタノール 10 L を製造した。

実施例 4 活性化されたエタノールを含有するエタノールの製造

実施例 2 に記載の方法で製造されたエタノール 0.1 L を、エタノール 9.9 L 中に加えて、良く攪拌して、活性化されたエタノールを 1 重量% 含有する本発

明の活性化エタノール 10 L を製造した。

実施例 5 燃料添加剤ブラウ F A の製造

実施例 3 で製造した活性化されたイソブタノールを 1 重量%含有するイソブタノール（比重、0.802）を 500 g、エタノール（比重、0.816）を 650 g、及びナフサ・ラフィネート（比重、0.7307）を 300 g 取り、これらを混合して攪拌して、燃料添加剤ブラウ F A を 1000 g 製造した。

実施例 6 燃料添加剤 B の製造

実施例 3 で製造した活性化されたイソブタノールを 1 重量%含有するイソブタノール（比重、0.802）を 50 g、メタノールを 410 g、メチル-tert-ブチル-エーテルを 50 g、トルエンを 100 g、及びナフサを 390 g 取り、これらを混合して、燃料添加剤 B を製造した。

実施例 7 ガソリン燃料組成物の製造

実施例 5 で製造した燃料添加剤ブラウ F A を重量で約 7 重量%になるようにレギュラーガソリンに添加して、本発明のガソリン燃料組成物を製造した。

実施例 8 ガソリン燃料組成物の製造

実施例 4 で製造した活性化されたエタノールを 1 重量%含有する本発明の活性化エタノールを 6500 g、ブタノールを 500 g 取り、これらの混合物をガソリン 3000 g 中に混合してガソリン燃料組成物を製造した。

このガソリン燃料組成物を常温で 4 年間保存してきたが、未だに相分離を起こしていない。また、この燃料組成物を -20°C で、24 時間冷却したが、相分離は生じなかった。

試験例 1

実施例 7 で製造したガソリン燃料組成物、及びレギュラーガソリンを使用して東京都環境科学研究所にて排気ガス及び燃費の試験を行った。

使用した自動車：型式 E-GX100 (トヨタ)

エンジン排気量 1988 cc

圧縮比 9.6

最大出力 140 ps / 5600 rpm

試験条件 : 10・15モード

試験室温度 : 22.2℃

試験室相対湿度 : 55.2%

試験室大気圧 : 759.0 mmHg

試験機器 : 小型シャシダイナモメータ (日立製作所)

排気ガス測定器 : MEXA-9200、MEXA-9500G (堀場製作所)

CVS装置 (CFV) : CVS-9200 (堀場製作所)

(1) レギュラーガソリンを用いた試験結果

まず、レギュラーガソリンを用いて試験した。

ガス採取量 : 6.084 m³/分

希釈排出ガス量 : 66.928 m³

希釈率 : 16.014

であり、カーボンバランスによる燃料消費率は、10.23 km/Lであった。
排気ガスの分析の結果を次の表3に示す。

表3

排出ガス成分	希釈排出ガス濃度 A	希釈空気濃度 B	正味濃度 $A - \{B * (1 - 1/DF)\}$	排出量
CO (NDIR)	43.07 ppm	0.2 ppm	42.86 ppm	0.80g/km
HC (FID)	13.19 ppm	2.40 ppmC	10.93 ppmC	0.10g/km
NO _x (CLD)	4.19 ppm	0.03 ppm	4.16 ppm	0.121g/km
CO ₂ (NDIR)	0.831%	0.047%	0.787%	230.9g/km

(備考) ①NDIR:非分散形赤外線分析計 ②FID:水素炎イオン化形分析計

③CLD:化学発光分析計

(2) 実施例 7 で製造したガソリン燃料組成物を用いた試験結果

次に、実施例 7 で製造したガソリン燃料組成物を用いて試験した。

ガス採取量 : 6.065 m³/分

希釈排出ガス量 : 66.710 m³

希釈率 : 15.924

であり、カーボンバランスによる燃料消費率は、10.22 km/Lであった。
排気ガスの分析の結果を次の表 4 に示す。

表 4

排出ガス成分	希釈排出ガス濃度 A	希釈空気濃度 B	正味濃度 $A - \{B \cdot (1 - 1/DF)\}$	排出量
CO (NDIR)	22.61 ppm	0.57 ppm	22.07 ppm	0.41g/km
HC (FID)	5.84 ppm	2.11 ppmC	3.87 ppmC	0.04g/km
NO _x (CLD)	4.55 ppm	0.05 ppm	4.50 ppm	0.130g/km
CO ₂ (NDIR)	0.839%	0.043%	0.798%	232.1g/km

(備考) ①NDIR:非分散形赤外線分析計 ②FID:水素炎イオン化形分析計

③CLD:化学発光分析計

産業上の利用可能性

本発明は、プラウ触媒で活性化された低級アルコール、それを用いた燃料添加剤、及び燃料組成物を提供するものである。本発明の燃料添加剤を使用した燃料や、本発明の燃料組成物は、従来の燃料の燃費などの性能を下げることなく、排気ガスの有害成分を大幅に減少させることができ、内燃機関などによる大気汚染を防止することができ、環境にやさしい燃料組成物を提供することができる。また、本発明の燃料添加剤は、燃料を比較的高濃度で混合することができ、混合後も長期間にわたって安定していることから、化石燃料の使用量を減少させた、環境にやさしい燃料組成物を提供するものである。

請 求 の 範 囲

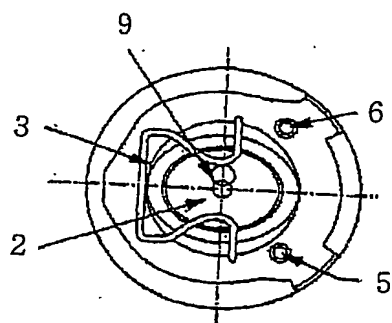
1. 木酢液及び／又は竹酢液の存在下で、加温、加圧することにより活性化された物質、又は当該物質の加工物に低級アルコールを接触させることからなる、低級アルコールを活性化させる方法。
2. 物質が、セラミックス、天然石、ガラス、二酸化ケイ素などの無機物質類、アルミニウム、チタン、ステンレス、鉄等の金属類、金、銀等の貴金属類、樹脂などの有機物質類からなる群から選ばれる物質である請求の範囲第1項に記載の方法。
3. 加圧が、5～50気圧である請求の範囲第1項又は第2項に記載の方法。
4. 木酢液が、広葉樹、針葉樹等からの木酢液である請求の範囲第1項～第3項のいずれかに記載の方法。
5. 請求の範囲第1項～第4項のいずれかに記載の方法において、活性化された物質が二酸化ケイ素であり、その加工物がガラスである請求の範囲第1項～第4項のいずれかに記載の方法。
6. 請求の範囲第1項～第5項のいずれかに記載の方法により活性化された低級アルコール。
7. 低級アルコールが、エタノール及び／又はイソブタノールである請求の範囲第6項に記載の活性化された低級アルコール。
8. 請求の範囲第6項又は第7項に記載の活性化された低級アルコールを、0.5%以上含有している低級アルコール。
9. 活性化された低級アルコールの含有量が、0.5～10重量%である請求の範囲第8項に記載の低級アルコール。
10. 請求の範囲第8項又は第9項に記載の低級アルコールの1種又は2種以上を含有してなる燃料添加剤。
11. 請求の範囲第8項又は第9項に記載の低級アルコールの1種又は2種以上を1～80重量%含有してなる燃料添加剤。
12. さらに、石油留分を含有してなる請求の範囲第10項又は第11項に記載の燃料添加剤。

13. 燃料、及び請求の範囲第10項～第12項のいずれかに記載の燃料添加剤を含有してなる燃料組成物。

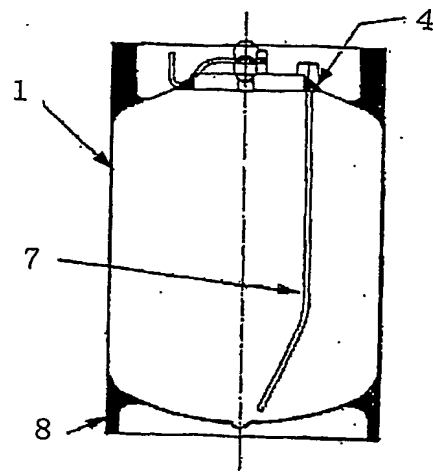
14. 燃料添加剤の含有量が、5～70重量%である請求の範囲第13項に記載の燃料組成物。

15. 燃料が、ガソリン、軽油、又は重油である請求の範囲第13項又は第14項に記載の燃料組成物。

第 1 図



第 2 図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/16457

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ C10L1/18, C10C5/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ C10L1/18, C10C5/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
JICST FILE (JOIS)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, A	JP 2003-219871 A (Ogiwara Kabushiki Kaisha), 05 August, 2003 (05.08.03), Claims (Family: none)	1-15
P, A	JP 2003-138278 A (Sumiyoshi Kogyo Kabushiki Kaisha), 14 May, 2003 (14.05.03), Claims (Family: none)	1-15
A	JP 11-269469 A (Kaihatsu Koji Kabushiki Kaisha), 05 October, 1999 (05.10.99), Claims (Family: none)	1-15

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 13 February, 2004 (13.02.04)	Date of mailing of the international search report 24 February, 2004 (24.02.04)
---	--

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/16457

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 8-109111 A (Masayuki KAMIEDA), 30 April, 1996 (30.04.96), Claims (Family: none)	1-15
A	JP 5-98264 A (Yugen Kaisha San'in Nekkaricchi), 20 April, 1993 (20.04.93), Claims (Family: none)	1-15
A	JP 10-101301 A (Isuzu Motors Ltd.), 21 April, 1998 (21.04.98), Claims (Family: none)	1-15

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁷ C10L1/18, C10C5/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁷ C10L1/18, C10C5/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

JICSTファイル (JOIS)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
PA	JP 2003-219871 A(萩原株式会社) 2003. 08. 05, 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1-15
PA	JP 2003-138278 A(住吉工業株式会社) 2003. 05. 14, 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1-15
A	JP 11-269469 A(開発工事株式会社) 1999. 10. 05, 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1-15

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

13. 02. 2004

国際調査報告の発送日

24. 2. 2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

近藤 政 克

4V

9734

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 8-109111 A(上江田政幸) 1996. 04. 30, 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1 - 15
A	JP 5-98264 A(有限会社山陰ネツカリツチ) 1993. 04. 20, 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1 - 15
A	JP 10-101301 A(いすゞ自動車株式会社) 1998. 04. 21, 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1 - 15